PAI ONT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202

Date of mailing (day/month/year)

12 March 2001 (12.03.01)

Arlington, VA 22202
ETATS-UNIS D'AMERIQUE
in its capacity as elected Office

International application No.
PCT/DE00/02071

International filing date (day/month/year)
26 June 2000 (26.06.00)

Applicant

JANSING, Thomas

The designated Office is hereby notified of its election made:			
X in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:			• ••
18 December 2000 (18.12.00)		•	
in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:	-	٠,	
randik saturu satu sepitik menandi. Maji mendalah digan beraggian sepitian se	-		
			•
2. The election X was			
was not made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 app	lies. within t	he time limit u	nder
Rule 32.2(b).			
			· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
			•
and for the control of the control o			

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Authorized officer

Maria Kirchner

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

323 Form PCT/IB/331 (July 1992)

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

DE0002071

		्रे चार कार्त्र । स्त्रे । स्वर्	च्च -	
				egiti Litera
•			*	
			*	
-		•		
				**** **** ****
		A (1)		i de la companya de l
		• • • • • • • • • • • • • • • • • • •		
		5,01		
			. 4	
	***		•	
		and the second s	: 1 · · · · · ·	
			2 T 12	
	1000			
	i ne de la			
* •		y		
•		M THE		*
		•		
	4			v i
		of [™] is * or .		
		e		

Q L



PCT

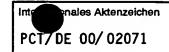
INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts	WEITERES	siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit			
99P3470P	VORGEHEN	zutreffend, nachstehender Punkt 5			
Internationales Aktenzeichen	Internationales Anmelde (Tag/Monat/Jahr)	edatum	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)		
PCT/DE 00/02071	26/06/20	000	09/07/1999		
Anmelder		L			
SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT					
		<u> </u>			
Dieser internationale Recherchenbericht wurd Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Int			rstellt und wird dem Anmelder gemäß		
Dieser internationale Recherchenbericht umfa	Rt incoocamt 4	Blätter.			
· ·			Unterlagen zum Stand der Technik bei.		
Grundlage des Berichts					
 a. Hinsichtlich der Sprache ist die inter durchgeführt worden, in der sie eing 	nationale Recherche auf ereicht wurde, sofern unt	der Grundlage der inter er diesem Punkt nichts a	nationalen Anmeldung in der Sprache anderes angegeben ist.		
Die internationale Recherch Anmeldung (Regel 23.1 b))	e ist auf der Grundlage ei durchgeführt worden.	iner bei der Behörde ein	ngereichten Übersetzung der internationalen		
b. Hinsichtlich der in der internationale Recherche auf der Grundlage des S	n Anmeldung offenbarten	Nucleotid und/oder /	Aminosäuresequenz ist die internationale		
in der internationalen Anmel					
zusammen mit der internation	nalen Anmeldung in com	puterlesbarer Form eing	gereicht worden ist.		
bei der Behörde nachträglich	n in schriftlicher Form ein	gereicht worden ist.			
bei der Behörde nachträglich	n in computerlesbarer For	rm eingereicht worden is	st.		
Die Erklärung, daß das nach internationalen Anmeldung i	träglich eingereichte sch m Anmeldezeitpunkt hins	riftliche Sequenzprotoko lusgeht, wurde vorgeleg	oll nicht über den Offenbarungsgehalt der rt.		
	•	• •	n schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen,		
2. Bestimmte Ansprüche hat	en sich als nicht reche	rchlerbar erwiesen (sie	ehe Feld I).		
3. Mangelnde Einheitlichkeit	der Erfindung (siehe Fe	ld II).	,		
4. Hinsichtlich der Bezelchnung der Erfin					
wird der vom Anmelder eing		J			
wurde der Wortlaut von der	senorde wie rolgt testges	eczc			
5. Hinsichtlich der Zusammenfassung					
wird der vom Anmelder eing	ereichte Wortlaut genehn	nigt.			
	innerhalb eines Monats		ng von der Behörde festgesetzt. Der os ndung dieses international n		
6. Folgende Abbildung der Zelchnungen is	st mit d r Zusammenfass	ung zu veröffentlichen: /	Abb. Nr1		
wie vom Anmelder vorgesch	lagen		keine der Abb.		
weil der Anm Ider selbst kei	ne Abbildung vorgeschlag	gen hat.			
weil diese Abbildung die Erfi	ndung besser kennz ich	net.			
L					

		ì	
			٠,
)-

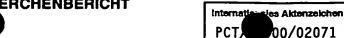




Feld III	WORTLAUT DER ZUSAMMENFASSUNG (Fortsetzung von Punkt 5 auf Blatt 1)
Die Z Zeile	usammenfassung wird wie folgt geändert: e 1: "Die Erfindung betrifft" weglassen.

	y.	
4		

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT



PCT 00/02071 A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 H01M8/02 Nach der Internationalen Patentidassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK **B. RECHERCHIERTE GEBIETE** Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 7 HO1M Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, PAJ C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Kategorie* Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile Betr. Anspruch Nr. X DE 42 37 602 A (SIEMENS AG) 1,2,4 11. Mai 1994 (1994-05-11) Ansprüche 1,3,6,7,11 Spalte 3, Zeile 45 - Zeile 62 Spalte 5, Zeile 41 - Zeile 51 Spalte 7, Zeile 6 - Zeile 33 Y 5-8 Y DE 298 02 444 U (SIEMENS AG) 5-8 1. April 1999 (1999-04-01) Ansprüche 1-4; Abbildung 1 Seite 3, Absatz 5 - Absatz 6 Seite 2, Absatz 3 X 1-3,5-8DE 195 17 443 A (MOTOREN TURBINEN UNION) Α 14. November 1996 (1996-11-14) Ansprüche 1,2 -/--Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu X Siehe Anhang Patentfamilie Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondem nur zum Verständnis des der "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist Erfindung zugrundellegenden Prinzips oder der ihr zugrundellegenden Theorie angegeben ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er-scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkelt beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie Ist Datum des Abschlusses der internationalen Recherche Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 31. Oktober 2000 07/11/2000 Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevolimächtigter Bediensteter Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,

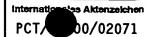
Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (Juli 1992)

Fax: (+31-70) 340-3016

D'hondt, J

	·.		
	¥6		

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT



		PCIA	7 0207 1
C.(Fortsetz	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komm	nenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 338 823 A (TOA NENRYO KOGYO KK) 25. Oktober 1989 (1989-10-25) Seite 6, Zeile 41 - Zeile 46		4
A	DE 40 16 157 A (ASEA BROWN BOVERI) 13. Dezember 1990 (1990-12-13) Spalte 10, Zeile 28 -Spalte 11, Zeile 18; Beispiel 1		1
P,A	DE 198 36 352 A (SIEMENS AG) 17. Februar 2000 (2000-02-17) Spalte 3, Zeile 43 - Zeile 48; Ansprüche 1,2; Abbildung 1		1,3
Α	WO 99 13522 A (JAFFREY DONALD ;CERAMIC FUEL CELLS LTD (AU)) 18. März 1999 (1999-03-18) Seite 11, Zeile 25 - Zeile 28		3
A	US 5 064 734 A (NAZMY MOHAMED) 12. November 1991 (1991-11-12) Anspruch 1		1
			1

	= (x) =		
		•	
			i
			1
			,

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Informatic attent family members

PCT 00/02071

Patent document cited in search report		Publication dat	Pat nt family member(s)	Publication dat
DE 4237602	A	11-05-1994	WO 9411913 A EP 0667042 A JP 8502851 T NO 951780 A	26-05-1994 16-08-1995 26-03-1996 05-05-1995
DE 29802444	U	01-04-1999	AU 3246899 A WO 9941795 A	30-08-1999 19-08-1999
DE 19517443	Α	14-11-1996	NONE	
EP 0338823	A	25-10-1989	JP 2177265 A JP 2037669 A DE 68917192 D DE 68917192 T US 4950562 A JP 2050983 A JP 2604437 B	10-07-1990 07-02-1990 08-09-1994 17-11-1994 21-08-1990 20-02-1990 30-04-1997
DE 4016157	Α	13-12-1990	NONE	
DE 19836352	Α	17-02-2000	AU 6461499 A WO 0010214 A	06-03-2000 24-02-2000
WO 9913522	A	18-03-1999	AU 8964898 A EP 1019974 A	29-03-1999 19-07-2000
US 5064734	Α	12-11-1991	EP 0424732 A JP 3155046 A	02-05-1991 03-07-1991

		,
		4



PATENT COOPERATION TRE

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 99P3470P	FOR FURTHER ACTION	SeeNotifica Examination	tionofTransmittalofInternational Preliminary n Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No.	International filing date (day/n	nonth/year)	Priority date (day/month/year)
PCT/DE00/02071	26 June 2000 (26.0	6.00)	09 July 1999 (09.07.99)
International Patent Classification (IPC) or n H01M 8/02	ational classification and IPC		
Applicant	SIEMENS AKTIENGESE	LLSCHAF	Т
and is transmitted to the applicant ac	ccording to Article 36.		national Preliminary Examining Authority
This report is also accompan amended and are the basis fo 70.16 and Section 607 of the	ied by ANNEXES, i.e., sheets o	f the descripti	on, claims and/or drawings which have been ations made before this Authority (see Rule
This report contains indications rela			
Basis of the report			
II Priority			
III Non-establishment	of opinion with regard to novelty	y, inventive st	tep and industrial applicability
IV Lack of unity of inv	ention		
V Reasoned statement citations and explan	t under Article 35(2) with regard nations supporting such statemen	to novelty, in	eventive step or industrial applicability;
VI Certain documents	cited		
VII Certain defects in the	ne international application		
VIII Certain observation	s on the international application	n	
Date of submission of the demand	Date o	f completion	of this report
18 December 2000 (18	.12.00)	18 (October 2001 (18.10.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Autho	rized officer	
Facsimile No.	Teleph	none No.	

•			

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

ational application No.	
PCT/DE00/02071	

i.	Basis (f the report
1.	With	egard to the elements of the international application:*
		the international application as originally filed
	$\overline{\boxtimes}$	the description:
		pages 1-7, as originally filed
		pages , filed with the demand
		pages, filed with the letter of
	\boxtimes	the claims:
	-	pages, as originally filed
		pages, as amended (together with any statement under Article 19 pages, filed with the demand
		1.7 C. 1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.
		pages, filed with the letter of
	\boxtimes	the drawings:
		pages 1/1 , as originally filed
		pages, filed with the demand
		pages, filed with the letter of
	L] t	e sequence listing part of the description:
		pages, as originally filed
		pages, filed with the demand pages, filed with the letter of
	the ir These	regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which ternational application was filed, unless otherwise indicated under this item. elements were available or furnished to this Authority in the following language
		furnished subsequently to this Authority in written form. furnished subsequently to this Authority in computer readable form. The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished. The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.
4.	. 🗀	The amendments have resulted in the cancellation of: the description, pages the claims, Nos the drawings, sheets/fig
5		This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**
•	in th	cement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to s report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 0.17).
*		eplacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

•

INTERNATIONAL PRELIFER RY EXAMINATION REPORT

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.):

Continuation of: Box I.6.

Amendments

The original Claims 1 and 2 have been combined. The additional feature relating to good electrical contacting in the last three lines of Claim 1 can be found on page 3, lines 24-26 and page 4, lines 15-22 of the description.

	÷			7
				b
		·		
			9.	
4.				
				·
		4-		

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

national application No.	
PCT/DE00/02071	

1. This report has been established as if no priority had been claimed due to the failure to furnish within the prescribed time limit the requested: copy of the earlier application whose priority has been claimed. translation of the earlier application whose priority has been claimed. This report has been established as if no priority had been claimed due to the fact that the priority claim has been found inval. Thus for the purposes of this report, the international filing date indicated above is considered to be the relevant date. 3. Additional observations, if necessary: SEE SEPARATE SHEET
translation of the earlier application whose priority has been claimed. This report has been established as if no priority had been claimed due to the fact that the priority claim has been found inval. Thus for the purposes of this report, the international filing date indicated above is considered to be the relevant date. Additional observations, if necessary:
This report has been established as if no priority had been claimed due to the fact that the priority claim has been found inval. Thus for the purposes of this report, the international filing date indicated above is considered to be the relevant date. 3. Additional observations, if necessary:
Thus for the purposes of this report, the international filing date indicated above is considered to be the relevant date. 3. Additional observations, if necessary:
3. Additional observations, if necessary:
SEE SEPARATE SHEET

			*: *:		 ·ķ	·
	,					
				÷		
					<i>3</i> • ,	•
					·	

INTERNATIONAL PRELIT RY EXAMINATION REPORT

Supplemental Box

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: Box II.3.

Priority

The priority is valid. Consequently, document $DE-A-198\ 36\ 352$ does not have to be taken into consideration.

	•			2.		••	•
							•
				*			

INTERNATIONAL PRELITARY EXAMINATION REPORT

International	application No.
PDE	00/02071

V.	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
	citations and explanations supporting such statement

1.	Statement			
	Novelty (N)	Claims	1-7	YES
		Claims		NO
	Inventive step (IS)	Claims	1-7	YES
		Claims		NO
	Industrial applicability (IA)	Claims	1-7	YES
		Claims		NO

2. Citations and explanations

Reference is made to the following documents:

D1: DE-A-42 37 602

D2: DE-A-195 17 443

D3: DE-A-40 16 157.

(i) Document D1 (see, in particular, Claims 6 and 11) discloses a high-temperature fuel cell stack as per the subject matter of the preamble to the present Claim 1, in which the metallic grid is coated with anode contact material comprising one or more of the components Ru, Ni, NiO or nickel cermets and yttrium-stabilised zirconium oxide.

The metallic grid is oxidation-protected since

-Ru or Ni is oxidised instead of the grid

or

-NiO or Ni cermets and yttrium-stabilised zirconium oxide (Y_2O_3/ZrO_2) are already

oxidised and therefore provide an oxidationresistant protective layer <u>for the base</u> material of the grid.

- (ii) Structure 2A of the current collector in Figure 2a of document D2 is formed using nickel-plated noble steel wire. Although Ni is oxidised in air, the Ni layer continues to provide oxidation protection for the grid per se.
- (iii) Claim 6 of document D3 discloses that the current collectors (6 and 7) are formed from materials such as silicon carbide, tin oxide, La/Mn perovskite or Ni/ZrO₂ cermet. Such materials have oxidation protection and oxidation resistance.

However, neither Ru or Ni (D1 and D2) or the Ni in the Ni and yttrium-stabilised zirconium oxide (Y_2O_3/ZrO_2) cermets (D1 and D3) can be considered to be oxidation-resistant per se. This has the disadvantage that the thickness and flexibility of the grid change. Consequently, although NiO (D1) is already oxidised and would therefore be resistant to further oxidation, it cannot guarantee good electrical contacting, since NiO is associated with a high contact resistance.

The silicon carbide, tin oxide and La/Mn perovskite in document D3 are oxidation-resistant and conductive. Nevertheless, D3 teaches that the current collectors on the anode side **consist of** said materials, which rules out an additional coating. This has the disadvantage per se that the collectors

•					ş	•
	•			*		٤
				* *		
			•		rý)	

are at least more expensive and less flexible than the coated metal grids of the present invention.

Claim 1 therefore meets the requirements of PCT Article 33(2) to (4).

		į.	·	•
		3.5		
	ŧ			
	·			

	PC E 00/02071
Certain defe	cts in the international application
following defe	cts in the form or contents of the international application have been noted:
(i)	Claim 6 should read " $\mathbf{Cr_3C_2}$ ".
(ii)	The description has not been brought into line.

				•
				·
	2			

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

REC'D 22 OCT 2001

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

			riogor / o r o	17		
Aktenzeichen d 1999P0347	des Anmelders oder Anwalts OWO	WEITERES VORG	siehe Mittei EHEN vorläufigen	lung über die Übersendung des internationalen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)		
Internationales		Internationales Anmelde	datum/Tan/Monat/ lahr)	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag)		
PCT/DE00/		26/06/2000	uatum (ragimonavsam)	09/07/1999		
	Patentklassifikation (IPK) oder i		1 IDK	03/07/1333		
H01M8/02	raterinassiination (IFK) oderi	ialionale Riassilikation und				
Anmelder		*				
SIEMENS A	KTIENGESELLSCHAFT	et al.				
	ternationale vorläufige Prüt erstellt und wird dem Anme			onalen vorläufigen Prüfung beauftragten		
2. Dieser B	2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.					
und/d Behö	Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT). Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.					
_	ericht enthält Angaben zu fo	_				
1 2	☑ Grundlage des Berichts ☑ Priorität					
_	_	Sutachtens über Neube	it orfinderische Tätic	keit und gewerbliche Anwendbarkeit		
_	Mangelnde Einheitlichke		it, erindensche Tally	reit und gewerbliche Anwendbarkeit		
v 2		nach Artikel 35(2) hins		der erfinderischen Tätigkeit und der zung dieser Feststellung		
VI 🗆	□ Bestimmte angeführte U	-	3	3		
VII 🛭	Bestimmte Mängel der i	nternationalen Anmeldu	ung			
VIII E	Bestimmte Bemerkunge	n zur internationalen A	nmeldung	•		
Datum der Einre	eichung des Antrags		Datum der Fertigstellur	ng dieses Berichts		
18/12/2000			18.10.2001			
Name und Post Prüfung beauftr	anschrift der mit der internation agten Behörde:	alen vorläufigen	Bevollmächtigter Bedie	nsteter Exp 150 C3 Million		
)) D-	ropäisches Patentamt 80298 München	annu d	Fitzpatrick, J	The series of th		
	I. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 x: +49 89 2399 - 4465	ерти и	Tel Nr +49 89 2399 85	570		

, !
V

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/02071

I. (Grun	ıdlage	des	Berichts
------	------	--------	-----	-----------------

		•								
1.	Au ein	Hinsichtlich der Bestandteile der internationalen Anmeldung (Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)): Beschreibung, Seiten:								
	1-7	•	ursprüngliche Fassung							
	Pat	tentansprüche, Nr	.:							
	1-7		eingegangen am	21/09/2001	mit Schreiben vom	20/09/2001				
	Zeichnungen, Blätter:									
	1/1		ursprüngliche Fassung							
2.	. Hinsichtlich der Sprache : Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.									
	Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um									
		die Sprache der Ü Regel 23.1(b)).	bersetzung, die für die Zwec	ke der internatio	nalen Recherche eing	ereicht worden ist (nac				
		die Veröffentlichur	ngssprache der internationale	n Anmeldung (n	ach Regel 48.3(b)).					
		die Sprache der Ü ist (nach Regel 55	lbersetzung, die für die Zwecl i.2 und/oder 55.3).	ke der internatio	nalen vorläufigen Prüf	iung eingereicht worder				
3.			internationalen Anmeldung of e Prüfung auf der Grundlage							
		in der internationa	len Anmeldung in schriftliche	Form enthalten	ist.					
		zusammen mit de	r internationalen Anmeldung i	n computerlesba	arer Form eingereicht	worden ist.				
		bei der Behörde n	achträglich in schriftlicher For	m eingereicht w	orden ist.					
		bei der Behörde n	achträglich in computerlesbai	er Form eingere	eicht worden ist.					
			3 das nachträglich eingereich alt der internationalen Anmeld							
			3 die in computerlesbarer For entsprechen, wurde vorgeleg		rmationen dem schrift	lichen				
4.	Auf	grund der Änderung	gen sind folgende Unterlagen	fortgefallen:						

		a.		Ų
			.2	
			ů.	
			÷	

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/02071

		Beschreibung,	Seiten:							
		Ansprüche,	Nr.:							
		Zeichnungen,	Blatt:							
5.	□ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).									
		(Auf Ersatzblätter, di beizufügen).	e solche Ändel	rungen enthalte	n, ist unter Punkt 1 hinzuwe	isen;sie sind diesem Berich				
6.	Etwaige zusätzliche Bemerkungen: siehe Beiblatt									
II.	Priorität									
1.					spruchten Priorität erstellt wo schriebenen Frist eingereich					
		☐ Abschrift der frül	neren Anmeldu	ıng, deren Prior	ität beansprucht worden ist.					
		☐ Übersetzung der	früheren Anm	eldung, deren l	Priorität beansprucht worder	ı ist.				
2.		☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung der beanspruchten Priorität erstellt worden, da sich der Prioritätsanspruch als ungültig herausgestellt hat.								
		Zwecke dieses Bericl bliche Datum.	nts gilt daher d	as obengenanr	te internationale Anmeldeda	atum als das				
3.		aige zusätzliche Beme e Beiblatt	erkungen:							
V.					ich der Neuheit, der erfind rungen zur Stützung diese	lerischen Tätigkeit und der r Feststellung				
1.	Fest	stellung								
	Neu	heit (N)	Ja: Nei	Ansprüche n: Ansprüche	1-7					
	Erfin	iderische Tätigkeit (E		Ansprüche n: Ansprüche	1-7					
	Gew	erbliche Anwendbark		Ansprüche n: Ansprüche	1-7					

2. Unterlagen und Erklärungen

siehe Beiblatt

			•
			2
÷			
			-

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/02071

VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist: siehe Beiblatt

				•
		÷		
r.				
		*	*	

Sektion I.6: Änderungen

Die ursprünglichen Ansprüche 1 und 2 wurden zusammengefügt. Das zusätzliche Merkmal bezüglich einer guten elektrischen Kontaktierung der letzten drei Zeilen des Anspruchs 1 sind effektiv aus der Beschreibung auf Seite 3, Zeilen 24-26 und Seite 4, Zeilen 15-22 zu entnehmen.

Sektion II.3: Priorität

Dies ist gültig. Insofern muß das Dokument DE 198 36 352 nicht berücksichtigt werden.

Sektion V.2: Zitierungen und Erklärungen

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: DE 42 37 602 D2: DE 195 17 443 D3: DE 40 16 157

- (i) Dokument D1 (siehe vor allem die Ansprüche 6 und 11) offenbart ein HTBZ-Stapel gemäß dem Gegenstand des Oberbegriffs des vorliegenden Anspruchs 1 und wobei das metallische Netz mit Anodenkontaktmaterial beschichtet ist, welches Anodenkontaktmaterial einen oder mehrere der Bestandteile Ru, Ni, NiO oder umfaßt. Insofern ist das metallische Netz oxidationsgeschützt, weil
- statt das Netz, Ru oder Ni oxidiert wird

oder

- NiO oder Cermets aus Ni und Yttrium-stabilisiertem Zirkonoxid (Y₂O₃/ZrO₂) schon oxidiert sind und bieten deshalb eine oxidationsresistente Schutzschicht <u>für das</u> **Grundmaterial des Netzes** an.
- (ii) Die Struktur 2A des Stromkollektors der Figur 2a des Dokuments D2 ist mit Ni plattiertem Edelstahldraht gebildet. Obwohl Ni im Luft oxidiert wird, ist die Ni Schicht immer noch ein Oxidationsschutz für das Netz as sich.
- (iii) Anspruch 6 des Dokuments D3 offenbart, daß die Stromkollektoren 6 und 7 aus

	••	
	÷	

.

Werkstoffe wie Siliziumkarbid, Zinnoxyd, La/Mn-Perowskit oder Ni/ZrO2 Cermet gebildet werden. Solche Stoffe haben einen Oxidationsschutz sowie als auch einen Oxidationsresistenz.

Trotzdem jedoch können Ru oder Ni (D1 and D2) sowie der Ni in den aus Ni und Yttrium-stabilisiertem Zirkonoxid (Y2O3/ZrO2) Cermets(D1 und D3) an sich nicht als oxidationsresistent betrachtet werden. Dies hat den Nachteil, daß die Dicke und Flexibilität des Netzes sich ändern werden. Dazu obwohl NiO (D1) schon oxidiert ist, und deshalb gegenüber weitere Oxidation resistent wäre, kann diese keine gute elektrische Kontaktierung gewährleisten, da NiO mit einem hohen Übergangswiderstand verbunden ist.

Die Siliziumkarbid, Zinnoxyd und La/Mn Perowskit des Dokuments D3 sind Oxidationsresistent sowie leitend. Trotzdem lehrt D3, daß die Stromkollektor an der Anodenseite aus diese Werkstoffe bestehen, was eine zusätzliche Beschichtigung ausschließt. Dies an sich führt zum Nachteil, daß die Kollektoren mindestens teuerer und weniger flexibel als die beschichteten Metalnetze der vorliegeneden Erfindung wären.

Anspruch 1 erfüllt somit die Erfordernisse der Artikeln 33(2)-(4) PCT.

Sektion VII: Bestimmte Mängel

- (i) Anspruch 6 hätte "... Cr₃C₂" gelesen werden sollen
- (ii) Die Beschreibung wurde nicht angepaßt.

	•
	÷,







1

Ansprüche

- Brennstoffzelle (1) bzw. Brennstoffzellenstack mit schichtweise parallel angeordneten Kathoden (2),
- Elektrolyten (3),

Anoden (4) und

Interkonnektorplatten (5, 5') sowie mindestens einem metallischen Netz (6, 6'),

das zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5) zur

- 10 flexiblen Kontaktierung eingefügt ist, dadurch gekennzeichnet, daß das mindestens eine metallische Netz (6, 6') durch eine oxidationsresistente Schutzschicht (7) beschichtet und damit oxidationsgeschützt ist,
- 15 wobei die Schutzschicht (7) eine gute elektrische Kontaktierung zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5) ermöglicht.
 - 2. Brennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1,
- dadurch gekennzeichnet, daß 20 das Netz (6, 6') ein beschichtetes Nickelnetz ist.
 - Brennstoffzelle nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß
- 25 das Netz (6, 6') ein beschichtetes Edelstahlnetz ist.
 - Brennstoffzelle nach den Anspruch 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Schutzschicht (7) Chrom enthält.
 - Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche 2 - 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Schutzschicht (7) aus Chromcarbid besteht.
- 35 6. Brennstoffzelle nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß als Chromearbid C_3C_2 , CrC, Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ verwendet wird.



4
•







- 7. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Schutzschicht (7) eine Dicke (d) von etwa 0,1 - 10 μm
- aufweist.





	•	÷		
		ń		
w)				

Beschreibung

Oxidationsgeschützte elektrische Kontaktierung auf der Brenngasseite der Hochtemperatur-Brennstoffzelle

Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle bzw. einen Brennstoffzellenstack mit den weiteren Merkmalen des Oberbegriffs des Patentanspruchs 1.

Es ist bekannt, daß die Hintereinanderschaltung mehrerer 10 Brennstoffzellen einen Brennstoffzellenstapel ergibt (in der Fachliteratur auch als Brennstoffzellenstack bezeichnet), welcher der Reihenfolge nach aus einer Interkonnektorplatte, einer Schutzschicht, einer Kontaktschicht, einer Kathode, ei-15 nem Elektrolyten, einer Anode, einer weiteren Kontaktschicht sowie einer weiteren Interkonnektorplatte besteht. Die Interkonnektorplatte mit der jeweils aufgespritzten Schutz- und Kontaktschicht bildet eine Einheit. Kathode, Elektrolyt und Anode bilden die Elektrolyt-Elektroden-Einheit. Dié entspre-20 chenden Einheiten sind schichtweise parallel aufeinander gelegt sind und sich in der derselben Reihenfolge mehrmals wiederholen.

Kathode, Elektrolyt und Anode bilden eine Elektrolyt-Elektroden-Einheit. Dabei bildet jeweils eine zwischen benachbarten Interkonnektorplatten liegende Elektrolyt-Elektroden-Einheit mit den beidseitig an der Elektrolyt-Elektroden-Einheit unmittelbar anliegenden Kontakt- und Schutzschichten eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle, zu der auch noch die an der Schutzschicht bzw. den Kontaktschichten anliegenden Seiten jeder der beiden Interkonnektorplatten gehören. Die Interkonnektorplatten bestehen üblicherweise aus CrFe5 mit 1 % Y-Oxid, einer sogenannten ODS-Legierung.

In die Interkonnektorplatte sind Gaskanäle eingebracht, durch die zum einen das Brenngas z.B. Wasserstoff oder Methan (Erdgas) und zum anderen Sauerstoff bzw. Luft hindurchgeleitet

			•	
				**
				ř
34.7	,			
	4	i.		
			da.	

wird. Der Wasserstoff wird dabei an die Anodenseite, der Sauerstoff bzw. die Luft an die Kathodenseite geleitet. Die Hindurchleitung dieser Gase geschieht mit relativ geringem Überdruck von kleiner 1 bar.

5

10

15

Das planare Konzept der Hochtemperatur-Brennstoffzelle verlangt eine möglichst vollflächige Kontaktierung der Elektroden in beiden Gasräumen. Auf der Kathodenseite wird die Kontaktierung der Elektrode durch eine Kontaktschicht aus La-Perowskit gewährleistet, z.B. LagSrO0,2MnO3. Dieser Perowskit ist an Luft stabil. Auf der Brenngasseite dagegen gestaltet sich die Kontaktierung der Elektrode, also der Anode, schwieriger. Die vollständige Kontaktierung der Anode ist jedoch wegen der geringen Querleitfähigkeit der Anode notwendig. Die Anode wird im Siebdruckprozeß hergestellt und ist daher nicht vollflächig eben, weshalb eine flexible Kontaktierung erforderlich ist, die sehr gut elektrisch leitend ist und deren Beständigkeit über eine Betriebsdauer von etwa 40.000 h gewährleistet sein muß

20

Der Stand der Technik sieht vor, als flexible Kontaktierungen Nickelnetze einzusetzen. So werden beispielsweise ein feinmaschigeres und ein grobmaschigeres Nickelnetz übereinander gelegt, miteinander punktverschweißt, so daß eine flexible Zwischenlage mit einer guten Kontaktierung geschaffen wird.

. 30

25

Als Nachteil hat sich beim Stand der Technik herausgestellt, daß sowohl beim Verlöten der Brennstoffzellenstapel als auch beim Betrieb der Brennstoffzelle bzw. des Brennstoffzellenstacks im direkten Kontaktbereich Nickelnetz/CrFe5 eine Oxidschicht aufwächst, die im nicht stoffschlüssigen Kontakt aus Cr_2O_3 (Cr_XO_Y) und im stoffschlüssigen Kontakt wahrscheinlich

35

aus einem CrNi-Spinell besteht. Diese Oxidschichten sind maßgeblich verantwortlich für die zu hohen Serienwiderstände der Hochtemperaturbrennstoffzellen. Die elektrische Leistung wird dadurch stark negativ beeinflußt.

				•	
			•	: .	
				n ^a	
				∴•	
	Ç				
%					
		•			

30

35

Außerdem oxidiert das Nickelnetz beim Verlöten des Brennstoffzellenstacks mit einem Glaslot an Luftatmosphäre an der Oberfläche der Drähte einige µm in das Drahtinnere hinein. Durch die Bildung von Nickel-II-Oxid (NiO), das ein etwa 16 % größeres Volumen als Nickel aufweist, erfolgt eine Dickezunahme des gesamten Netzpaketes um etwa 10 - 40 µm (je nach Lötbedingungen). Die Dickenzunahme beträgt im oxidierten Bereich des Drahtes mehr als 16 %, da das entstandene NiO porös ist. Bei der Oxidierung versintern die Nickelnetze sowie deren Drähte miteinander. Bei der späteren Reduktion des Nikkelnetzes wird die ursprüngliche Dicke des Netzpaketes wieder erzeugt bzw. unter Umständen sogar noch reduziert.

Bei dieser Reduzierung versintern die Nickeldrähte miteinander, so daß eine Reduktion der angestrebten Flexibilität als
auch eine Reduzierung der Dicke eintritt, die unerwünschtist. Die Dickenreduzierung kann außerdem zu Kontaktabrissen
führen, welche Komponentenschädigungen erzeugen können.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine Brennstoffzelle bzw. einen Brennstoffzellenstack mit den Merkmalen des
Oberbegriffs des Patentanspruchs 1 derart weiterzubilden, daß
die Reduzierung der Dicke und der Flexibilität des/der Nikkelnetze(s) vermieden wird, so daß eine möglichst vollständige Kontaktierung der Anode und der Interkonnektorplatte
möglich ist.

Diese Aufgabe wird durch die kennzeichnenden Merkmale des Patentanspruchs 1 gelöst. Vorteilhafte Weiterbildungen der Brennstoffzelle ergeben sich aus den Unteransprüchen 2 - 8.

Als Kern der Erfindung wird es angesehen, daß zur flexiblen Kontaktierung zwischen Anode und Interkonnektorplatte mindestens ein metallisches Netz, das oxidationsgeschützt ist, eingefügt ist.

				•
			•	
				n ni
				e ^z
		4.		
,				
				•
		e de la companya de l		

Derartige Netze als Kontaktschicht haben den Vorteil, daß diese nicht mehr oxidieren können, so daß auch die Dickenzunahme entfällt. Indem keine Oxidation stattgefunden hat, ist auch kein Reduktionsvorgang der metallischen Netze notwendig und die damit verbundenen Nachteile, wie z.B. Kontaktabrisse bei der Dickenreduzierung oder Flexibilitätseinbußen, entstehen nicht. Aufgrund des nicht stattfindenden Wechselprozesses Oxidation/Reduktion bleibt die ursprüngliche Dicke und Flexibilität der oxidationsgeschützten Netze erhalten, so daß eine gut kontaktierende Kontaktschicht zwischen Anode und Interkonnektor geschaffen wird. Außerdem wird eine Dickereduzierung der metallischen Netze mit fortlaufender Betriebsdauer verhindert.

Zweckmäßigerweise sind die metallischen Netze mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht beschichtet. Die metallischen Netze, z.B. Nickelnetze, bleiben auf diese Weise sowohl in ihrer Zusammensetzung als auch in ihren mechanischen und elektrischen Eigenschaften unbeeinflußt, d.h. u.a. sie bleiben weitgehend flexibel, führen keine Dickenänderung herbei und behalten im wesentlichen ihre vorteilhaften Eigenschaften bei. Vorteilhaft ist dabei, daß vor dem Einbringen als flexible Kontaktschicht die metallischen Netze dem Beschichtungsprozeß unterzogen werden. Die Zusammenfügung mit den anderen Bauteilen sowie das Verlöten ist anschließend in üblicher Weise durchzuführen.

Als metallische Netze können beschichtete Nickelnetze vorgesehen sein. Die Nickelnetze erfüllen dabei die Anforderungen hinsichtlich der Flexibilität als auch der elektrischen Leitfähigkeit.

Als metallische Netze können auch beschichtete Edelstahlnetze vorgesehen sein, welche die Eigenschaft haben, daß sie nur oberflächlich bis in eine Tiefe von ca. 5 µm oxidieren. Die Edelstahlnetze sind dabei ebenfalls mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht beschichtet. Ein weiterer Vorteil der

						-
		(a)		•		-
					v-	
			-			
*						
	,					

Edelstahlnetze besteht darin, daß deren thermischer Ausdehnungskoeffizient an das thermische Verhalten der Komponenten des Brennstoffzellenstacks gut angepaßt ist. Vor allem beim Hochtemperaturbetrieb der Brennstoffzelle ist diese Eigenschaft von erheblichem Vorteil.

Vorteilhafterweise enthält die Schutzschicht Chrom und ist damit an die chemische Zusammensetzung der Interkonnektorplatte angepaßt.

10

15

Die Schutzschicht besteht vorteilhafterweise aus Chromcarbid, welches in hohem Maße elektrisch leitend ist und sehr gut am metallischen Netz haftet. Eine Chromcarbidschicht ist außerdem sehr korrosionsbeständig gegen entsprechende Sauerstoffpartialdrücke auf der Brenngasseite. Ferner sind diese Schichten stabil unter Verwendung von Methan bzw. kohlestämmigen Gasen, welche spätere Einsatzmedien auf der Brenngasseite der Hochtemperatur-Brennstoffzelle sind.

Ein weiterer Vorteil der Beschichtung mit Chromcarbid besteht darin, daß bei Verwendung von kohlestämmigen Gasen, die durch die Gaskanäle der Anodenseite der Interkonnektoplatten hindurch geleitet werden, geringe Bestandteile aus den Schutzschichten durch die kohlestämmigen Gase wieder nachgebessert werden. Die Chromcarbidschicht ist daher thermodynamisch besonders günstig.

Als Chromcarbid können z.B. C_3C_2 , CrC, Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ verwendet werden.

30

Es ist auch möglich, daß die Schutzschicht der metallischen Netze aus Chromnitrid besteht.

Zweckmäßigerweise weist die Schutzschicht eine Dicke d von 0,1 - 10 µm auf, so daß einerseits ein ausreichender Oxidationsschutz vorhanden ist und andererseits die Flexibilität der metallischen Netze kaum eingeschränkt wird.

			•	•
			نی	
:				
A				

Die Erfindung ist anhand eines vorteilhaften Ausführungsbeispiels in den Zeichnungsfiguren näher erläutert. Diese zeigen:

- 5 FIG 1 eine schematische Querschnittsdarstellung der Schichten einer Brennstoffzelle sowie
 - FIG 2 eine vergrößerte, schematische Querschnittsdarstellung eines beschichteten Nickelnetzes.

Der Brennstoffzellenstapel der Brennstoffzelle 1 entsprechend der schematischen Darstellung in FIG 1 besteht aus einer Interkonnektorplatte 5', einer Schutzschicht 8, einer Kontaktschicht 9, einer Kathode 2, einem Elektrolyten 3, einer Anode 4, zwei aufeinanderliegenden Nickelnetzen 6, 6' sowie einer Interkonnektorplatte 5, wobei diese Bauteile schichtweise aufeinander parallel angeordnet sind. Das Nickelnetz 6 ist dünner als das Nickelnetz 6'.

20 Die Nickelnetze 6, 6' sind oxidationsgeschützt, um eine Oxidation dieser Netze , welche üblicherweise beim Verlöten des gesamten Brennstoffzellenstacks auftritt, zu vermeiden. Die Oxidation der Nickelnetze ist mit einer Dickenzunahme verknüpft, wobei bei dem späteren Reduktionsvorgang die ur-25 sprüngliche Dicke des Netzpaketes wieder erzeugt wird. Dies kann zu Kontaktabrissen führen, welche Komponentenschädigungen erzeugen können. Außerdem versintern die Nickeldrähte nach der Reduzierung miteinander, so daß eine Reduktion der angestrebten Flexibilität resultiert. Die oxidationsgeschütz-30 ten Netze vermeiden demnach den Oxidations-/Reduktionsprozeß des Netzpaketes und die damit verbundenen Nachteile. Die ursprüngliche Flexibilität sowie die Dicke der Netze kann beibehalten werden, so daß eine vollflächige Kontaktierung von Anode 4 und der Kontaktschicht der Nickelnetze 6, 6' sowie 35 der Interkonnektorplatte 5 geschaffen wird. Außerdem wird eine Dickenreduzierung der Nickelnetze 6, 6' beim Betrieb der

Brennstoffzelle 1 verhindert.

			•	•	-
			4		
				, •	
	•				

Wie in FIG 1 und FIG 2 verdeutlicht, sind die Nickelnetze 6, 6' mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht 7 beschichtet. Diese Beschichtung kann vor dem Zusammenbau der einzelnen Komponenten vorgenommen werden. Die Nickelnetze 6, 6' werden somit in ihren ursprünglichen, vorteilhaften Eigenschaften nicht durch einen Oxidations- und einen anschließenden Reduktionsprozeß verändert. FIG 2 zeigt in einem vergrößerten Ausschnitt die Beschichtung von einem Nickelnetz 6 bzw. 6'.

10

Anstatt der Nickelnetze 6, 6' können auch Edelstahlnetze vorgesehen sein, welche den Vorteil haben, daß deren thermischer Längenausdehnungskoeffizient an die Komponenten der Hochtemperatur-Brennstoffzelle angepaßt ist.

15

20

25

Die Schutzschicht 7 besteht aus Chromcarbid, welches den Vorteil hat, daß bei Verwendung von kohlestämmigen Gasen, die durch die Gaskanäle der Anodenseite der Interkonnektorplatten 5, 5' eingeleitet werden, verschwindende Bestandteile aus den Schutzschichten durch die kohlestämmigen Gase wieder nachgebessert werden.

Als Chromcarbide können C_3C_2 , CrC, Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ oder ähnliche Chromcarbide mit unterschiedlichen Wertigkeiten verwendet werden.

Die Schutzschicht 7 weist eine Dicke d von 0,1 - 10 μm auf, um eine Oxidation zuverlässig zu verhindern und die Flexibilität der Nickelnetze 6, 6' kaum zu beeinflussen.

			•		•
					-
				· .	
				عر	
ķ.					
			<u>-</u> -		
		·			

Patentansprüche

15

20

- 1. Brennstoffzelle (1) bzw. Brennstoffzellenstack mit schichtweise parallel angeordneten Kathoden (2), Elektrolyten (3), Anoden (4) und Interkonnektorplatten (5, 5') sowie mindestens einem metallischen Netz (6, 6'), das zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5) zur flexiblen Kontaktierung eingefügt ist,
- dadurch gekennzeichnet, daß das mindestens eine metallische Netz (6, 6') oxidationsgeschützt ist.
 - 2. Brennstoffzelle nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß das mindestens eine metallische Netz (6, 6') mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht (7) beschichtet ist.
 - 3. Brennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dad urch gekennzeichnet, daß das Netz (6, 6') ein beschichtetes Nickelnetz ist.
 - 4. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche, da durch gekennzeichnet, daß das Netz (6, 6') ein beschichtetes Edelstahlnetz ist.
- 25 5. Brennstoffzelle nach den Ansprüchen 2 4, da durch gekennzeich net, daß die Schutzschicht (7) Chrom enthält.
- 6. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche
 30 2 5,
 d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß die Schutzschicht (7) aus Chromcarbid besteht.
 - 7. Brennstoffzelle nach Anspruch 6,
- 35 dadurch gekennzeichnet, daß als Chromcarbid C_3C_2 , CrC, Cr $_7C_3$ oder $C_{23}C_6$ verwendet wird.

			,
1.			
		•	

8. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dad urch gekennzeich net, daß die Schutzschicht (7) eine Dicke (d) von etwa $0,1-10~\mu m$ aufweist.

					٦
	,	4	•	•	•
				÷	

Zusammenfassung

Oxidationsgeschützte elektrische Kontaktierung auf der Brenngasseite der Hochtemperatur-Brennstoffzelle

5

Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle (1) bzw. Brennstoffzellenstack mit schichtweise parallel angeordneten Kathoden (2), Elektrolyten (3), Anoden (4) und Interkonnektorplatten (5, 5') sowie mindestens einem metallischen Netz (6, 6'), das zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5) zur flexiblen Kontaktierung eingefügt ist, wobei mindestens ein metallisches Netz (6, 6') oxidationsgeschützt ist.

FIG 1

15

10

					. •
*					
					•
					×*
		4			
		¥		+,-	
	1 -				
		:			
	*				
			÷		
					45
					•

$\{\cdot\}$	ACODEWI GEBIET L	DES PATENT WESTERS
	Absender: INTERNATIONALE RECHERCHENBEHÖRDE	PCT
	SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT Postfach 22 16 34 80506 München GERMANY Co Eing. 0 6. Nov. 2000 GR	MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERMITTLUNG DES Reig MTERNATIONALEN RECHERCHENBERICHTS ODER DER ERKLÄRUNG (Regel 44.1 PCT)
	Frist	Absendedatum (Tag/Monat/Jahr) 07/11/2000
THE	Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 99P3470P	WEITERES VORGEHEN siehe Punkte 1 und 4 unten
	Internationales Aktenzeichen PCT/DE 00/02071	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 26/06/2000
<u>(</u>	Anmelder SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT	
	Wo sind Änderungen einzureichen? Unmittelbar beim Internationalen Büro der WIPO, 34, 0 Telefaxnr.: (41–22) 740.14.35 Nähere Hinwelse sind den Anmerkungen auf dem Beiblatt 2	Artikel 19: internationalen Anmeldung ändern (siehe Regel 46): üblicherweise zwei Monate ab der Übermittlung des en sind den Anmerkungen auf dem Beiblatt zu entnehmen. CHEMIN des Colombettes, CH-1211 Genf 20,
	dem Anmelder mitgeteilt, daß der Widerspruch und die Entscheidung hierüber zusam Widerspruchs als auch der Entscheidung hierüber an d sind.	er zusätzlichen Gebühr (zusätzlicher Gebühren) nach Regel 40.2 wird einen mit seinem Antrag auf Übermittlung des Wortlauts sowohl des lie Bestimmungsämter dem Internationalen Büro übermittelt worden gt; der Anmelder wird benachrichtigt, sobald eine Entscheidung
	4. Welteres Vorgehen: Der Anmelder wird auf folgendes aufm	
	Kurz nach Ablauf von 18 Monaten seit dem Prioritätsdatum wird d licht. Will der Anmelder die Veröffentlichung verhindern oder auf e bzw. 90 ⁵⁵ 3 vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die in me der internationalen Anmeldung oder des Prioritätsanspruchs b	nternationale Veröffentlichung eine Erklärung über die Zurücknah-
	Innerhalb von 19 Monaten seit dem Prioritätsdatum ist ein Antrag Anmelder den Eintritt in die nationale Phase bis zu 30 Monaten se verschieben möchte.	
	Innerhalb von 20 Monaten seit dem Prioritätsdatum muß der Anm Handlungen vor allen Bestimmungsämtern vomehmen, die nicht ir Anmeldung oder einer nachträglichen Auswahlerklärung ausgewäl Kapitel II des Vertrages nicht verbindlich ist.	nnerhalb von 19 Monaten seit dem Prioritätsdatum in der

Name und Postanschrift d r Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2

NL-2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Maria Van der Hoeven



						,
				,	,	. •
						•
		4				
		•	•			

Diese Anmerkungen sollen grundlegende Hinweise zur Einreichung von Änderungen gemäß Artikel 19 geben. Diesen Anmerkungen liegen die Erfordernisse des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens (PCT), der Ausführungsordnung und der Verwaltungsrichtlinien zu diesem Vertrag zugrunde. Bei Abweichungen zwischen diesen Anmerkungen und
obengenannten Texten sind letztere maßgebend. Nähere Einzelheiten sind dem PCT-Leitfaden für Anmelder, einer Veröffentlichung der
WIPO, zu entnehmen.

Die in diesen Anmerkungen verwendeten Begriffe "Artikel", "Regel" und "Abschnitt" beziehen sich jeweils auf die Bestimmungen des PCT-Vertrags, der PCT-Ausführungsordnung bzw. der PCT-Verwaltungsrichtlinien.

HINWEISE ZU ÄNDERUNGEN GEMÄSS ARTIKEL 19

Nach Erhalt des internationalen Recherchenberichts hat der Anmelder die Möglichkeit, einmal die Ansprüche der internationalen Anmeldung zu ändern. Es ist jedoch zu betonen, daß, da alle Teile der internationalen Anmeldung (Ansprüche, Beschreibung und Zeichnungen) während des internationalen vorläufigen Prüfungsverfahrens geändert werden können, normalerweise keine Notwendigkeit besteht, Änderungen der Ansprüche nach Artikel 19 einzureichen, außer wenn der Anmelder z.B. zum Zwecke eines vorläufigen Schutzes die Veröffentlichung dieser Ansprüche wünscht oder ein anderer Grund für eine Änderung der Ansprüche vor ihrer internationalen Veröffentlichung vorliegt. Weiterhin ist zu beachten, daß ein vorläufiger Schutz nur in einigen Staaten erhältlich ist.

Welche Telle der internationalen Anmeldung können geändert werden?

Im Rahmen von Artikel 19 können nur die Ansprüche geändert werden.

In der internationalen Phase können die Ansprüche auch nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert (oder nochmals geändert) werden. Die Beschreibung und die Zeichnungen können nur nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert werden.

Beim Eintritt in die nationale Phase können alle Teile der internationalen Anmeldung nach Artikel 28 oder gegebenenfalls Artikel 41 geändert werden.

Bis wann sind Änderungen einzureichen?

Innerhalb von zwei Monaten ab der Übermittlung des internationalen Recherchenberichts oder innerhalb von sechzehn Monaten ab dem Prioritätsdatum, je nachdem, welche Frist später abläuft. Die Änderungen gelten jedoch als rechtzeitig eingereicht, wenn sie dem Internationalen Büro nach Ablauf der maßgebenden Frist, aber noch vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die internationale Veröffentlichung (Regel 46.1) zugehen.

Wo sind die Änderungen nicht einzureichen?

Die Änderungen können nur beim Internationalen Büro, nicht aber beim Anmeldeamt oder der Internationalen Recherchenbehörde eingereicht werden (Regel 46.2).

Falls ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung eingereicht wurde/wird, siehe unten.

in welcher Form können Änderungen erfolgen?

Eine Änderung kann erfolgen durch Streichung eines oder mehrerer ganzer Ansprüche, durch Hinzufügung eines oder mehrerer neuer Ansprüche oder durch Änderung des Wortlauts eines oder mehrerer Ansprüche in der eingereichten Fassung.

Für jedes Anspruchsblatt, das sich aufgrund einer oder mehrerer Änderungen von dem ursprünglich eingereichten Blatt unterscheidet, ist ein Ersatzblatt einzureichen.

Alle Ansprüche, die auf einem Ersatzblatt erscheinen, sind mit arabischen Ziffern zu numerieren. Wird ein Ansprüch gestrichen, so brauchen, die anderen Ansprüche nicht neu numeriert zu werden. Im Fall einer Neunumerierung sind die Ansprüche fortlaufend zu numerieren (Verwaltungsrichtlinien, Abschnitt 205 b)).

Die Änderungen sind in der Sprache abzufassen, in der dieinternationale Anmeldung veröffentlicht wird.

Welche Unterlagen sind den Änderungen belzufügen?

Begleitschreiben (Abschnitt 205 b)):

Die Änderungen sind mit einem Begleitschreiben einzureichen.

Das Begleitschreiben wird nicht zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht. Es ist nicht zu verwechseln mit der "Erklärung nach Artikel 19(1)" (siehe unten, "Erklärung nach Artikel 19 (1)").

Das Begleitschreiben ist nach Wahl des Anmelders in englischer oder französischer Sprache abzufassen. Bei englischsprachigen Internationalen Anmeldungen ist das Begleitschreiben aber ebenfalls in englischer, bei französischsprachigen internationalen Anmeldungen in französischer Sprache abzufassen.

		•
		•••
		•
		ę"
		•
		•

ANMERKUNGEN ZU FORMBLATT PCT/ISA/220 (Fortsets.ng)

Im Begleitschreiben sind die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen anzugeben. So ist insbesondere zu jedem Ansprüch in der internationalen Anmeldung anzugeben (gleichlautende Angaben zu verschiedenen Ansprüchen können zusammengefaßt werden), ob

- der Anspruch unverändert ist;
- ii) der Anspruch gestrichen worden ist;
- iii) der Anspruch neu ist;
- iv) der Anspruch einen oder mehrere Ansprüche in der eingereichten Fassung ersetzt;
- v) der Anspruch auf die Teilung eines Anspruchs in der eingereichten Fassung zurückzuführen ist.

Im folgenden sind Beispiele angegeben, wie Änderungen im Begleitschreiben zu erläutern sind:

- [Wenn anstelle von ursprünglich 48 Ansprüchen nach der Änderung einiger Ansprüche 51 Ansprüche existieren]:
 "Die Ansprüche 1 bis 29, 31, 32, 34, 35, 37 bis 48 werden durch geänderte Ansprüche gleicher Numenerung ersetzt; Ansprüche 30, 33 und 36 unverändert; neue Ansprüche 49 bis 51 hinzugefügt."
- [Wenn anstelle von ursprünglich 15 Ansprüchen nach der Änderung aller Ansprüche 11 Ansprüche existieren]: "Geänderte Ansprüche 1 bis 11 treten an die Stelle der Ansprüche 1 bis 15."
- 3. [Wenn ursprünglich 14 Ansprüche existierten und die Änderungen darin bestehen, daß einige Ansprüche gestrichen werden und neue Ansprüche hinzugefügt werden]: Ansprüche 1 bis 6 und 14 unverändert; Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt. "Oder" Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt; alle übrigen Ansprüche unverändert."
- 4. [Wenn verschiedene Arten von Änderungen durchgeführt werden]: "Ansprüche 1-10 unverändert; Ansprüche 11 bis 13, 18 und 19 gestrichen; Ansprüche 14, 15 und 16 durch geänderten Ansprüche 14 ersetzt; Ansprüch 17 in geänderte Ansprüche 15, 16 und 17 unterteilt; neue Ansprüche 20 und 21 hinzugefügt."

"Erklärung nach Artikel 19(1)" (Regel 46.4)

Den Änderungen kann eine Erklärung beigefügt werden, mit der die Änderungen erläutert und ihre Auswirkungen auf die Beschreibung und die Zeichnungen dargelegt werden (die nicht nach Artikel 19 (1) geändert werden können).

Die Erklärung wird zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht.

Sie ist in der Sprache abzufassen, in der die internationalen Anmeldung veröffentlicht wird.

Sie muß kurz gehalten sein und darf, wenn in englischer Sprache abgefaßt oder ins Englische übersetzt, nicht mehr als 500 Wörter umfassen

Die Erklärung ist nicht zu verwechseln mit dem Begleitschreiben, das auf die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen hinweist, und ersetzt letzteres nicht. Sie ist auf einem gesonderten Blatt einzureichen und in der Überschrift als solche zu kennzeichnen, vorzugsweise mit den Worten "Erklärung nach Artikel 19 (1)".

Die Erklärung darf keine herabsetzenden Äußerungen über den inter nationalen Recherchenbericht oder die Bedeutung von in dem Bericht angeführten Veröffentlichungen enthalten. Sie darf auf im internationalen Recherchenbericht angeführte Veröffentlichungen, die sich auf einen bestimmten Anspruch beziehen, nur im Zusammenhang mit einer Änderung dieses Anspruchs Bezug nehmen.

Auswirkungen eines bereits gestellten Antrags auf internationalevorläufige Prüfung

Ist zum Zeitpunkt der Einreichung von Änderungen nach Artikel 19 bereits ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung gestellt worden, so sollte der Anmelder in seinem Interesse gleichzeitig mit der Einreichung der Änderungen beim Internation alen Büro auch eine Kopie der Änderungen bei der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragen Behörde einreichen (siehe Regel 62.2 a), erster Satz).

Auswirkungen von Änderungen hinsichtlich der Übersetzung derinternationalen Anmeidung beim Eintritt in die nationale Phase

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, daß bei Eintritt in die nationale Phase möglicherweise anstatt oder zus ätzlich zu der Übersetzung der Ansprüche in der eingereichten Fassung eine Übersetzung der nach Artikel 19 geänderten Ansprüche an die bestimmten/ausgewählten Ämter zu übermitteln ist.

Nähere Einzelheiten über die Erfordemisse jedes bestimmten/ausgewählten Amts sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

		. •
• .		
		. 1



(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro





(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 18. Januar 2001 (18.01.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 01/04981 A1

(51) Internationale Patentklassifikation7:

H01M 8/02

(72) Erfinder; und

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE00/02071

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): JANSING, Thomas [DE/DE]; Kilianstrasse 46, D-90425 Nürnberg (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:

26. Juni 2000 (26.06.2000)

(74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGE-SELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, D-80506 München

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(81) Bestimmungsstaaten (national): AU, CA, JP, US.

(30) Angaben zur Priorität: 199 32 192.2

9. Juli 1999 (09.07.1999) DE

(84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2, D-80333 München (DE).

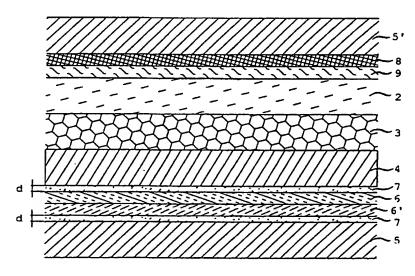
Veröffentlicht:

Mit internationalem Recherchenbericht.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: ELECTRICAL BONDING PROTECTED AGAINST OXIDATION ON THE GAS COMBUSTION SIDE OF A HIGH TEMPERATURE FUEL CELL

(54) Bezeichnung: OXIDATIONSGESCHÜTZTE ELEKTRISCHE KONTAKTIERUNG AUF DER BRENNGASSEITE DER HOCHTEMPERATUR-BRENNSTOFFZELLE



(57) Abstract: The invention concerns a fuel cell (1) or a stack of fuel cells comprising cathodes (2), electrolytes (3), anodes (4) and interconnection plates (5, 5') arranged in parallel layers, and at least a metal lattice (6, 6') inserted between the anode (4) and the interconnection plate (5) for a flexible bonding. The inventive fuel cell is characterised in that the metal lattice (6, 6') is protected against oxidation.

(57) Zusammenfassung: Eine Brennstoffzelle (1) bzw. ein Brennstoffzellenstack mit schichtweise parallel angeordneten Kathoden (2), Elektrolyten (3), Anoden (4) und Interkonnektorplatten (5, 5') sowie mindestens einem metallischen Netz (6, 6'), das zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5) zur flexiblen Kontaktierung eingefügt ist, wobei mindestens ein metallisches Netz (6, 6') oxidationsgeschützt ist.

0.01/04981



Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche gelienden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

1

Beschreibung

Oxidationsgeschützte elektrische Kontaktierung auf der Brenngasseite der Hochtemperatur-Brennstoffzelle

5

25

30

Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle bzw. einen Brennstoffzellenstack mit den weiteren Merkmalen des Oberbegriffs des Patentanspruchs 1.

10 Es ist bekannt, daß die Hintereinanderschaltung mehrerer Brennstoffzellen einen Brennstoffzellenstapel ergibt (in der Fachliteratur auch als Brennstoffzellenstack bezeichnet), welcher der Reihenfolge nach aus einer Interkonnektorplatte, einer Schutzschicht, einer Kontaktschicht, einer Kathode, einem Elektrolyten, einer Anode, einer weiteren Kontaktschicht 15 sowie einer weiteren Interkonnektorplatte besteht. Die Interkonnektorplatte mit der jeweils aufgespritzten Schutz- und Kontaktschicht bildet eine Einheit. Kathode, Elektrolyt und Anode bilden die Elektrolyt-Elektroden-Einheit. Die entspre-20 chenden Einheiten sind schichtweise parallel aufeinander gelegt sind und sich in der derselben Reihenfolge mehrmals wiederholen.

Kathode, Elektrolyt und Anode bilden eine Elektrolyt-Elektroden-Einheit. Dabei bildet jeweils eine zwischen benachbarten Interkonnektorplatten liegende Elektrolyt-Elektroden-Einheit mit den beidseitig an der Elektrolyt-Elektroden-Einheit unmittelbar anliegenden Kontakt- und Schutzschichten eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle, zu der auch noch die an der Schutzschicht bzw. den Kontaktschichten anliegenden Seiten jeder der beiden Interkonnektorplatten gehören. Die Interkonnektorplatten bestehen üblicherweise aus CrFe5 mit 1 % Y-Oxid, einer sogenannten ODS-Legierung.

In die Interkonnektorplatte sind Gaskanäle eingebracht, durch die zum einen das Brenngas z.B. Wasserstoff oder Methan (Erdgas) und zum anderen Sauerstoff bzw. Luft hindurchgeleitet

2

wird. Der Wasserstoff wird dabei an die Anodenseite, der Sauerstoff bzw. die Luft an die Kathodenseite geleitet. Die Hindurchleitung dieser Gase geschieht mit relativ geringem Überdruck von kleiner 1 bar.

5

10

15

Das planare Konzept der Hochtemperatur-Brennstoffzelle verlangt eine möglichst vollflächige Kontaktierung der Elektroden in beiden Gasräumen. Auf der Kathodenseite wird die Kontaktierung der Elektrode durch eine Kontaktschicht aus Laperowskit gewährleistet, z.B. Lagsroo,2Mno3. Dieser Perowskit ist an Luft stabil. Auf der Brenngasseite dagegen gestaltet sich die Kontaktierung der Elektrode, also der Anode, schwieriger. Die vollständige Kontaktierung der Anode ist jedoch wegen der geringen Querleitfähigkeit der Anode notwendig. Die Anode wird im Siebdruckprozeß hergestellt und ist daher nicht vollflächig eben, weshalb eine flexible Kontaktierung erforderlich ist, die sehr gut elektrisch leitend ist und deren Beständigkeit über eine Betriebsdauer von etwa 40.000 h gewährleistet sein muß

20

25

30

Der Stand der Technik sieht vor, als flexible Kontaktierungen Nickelnetze einzusetzen. So werden beispielsweise ein feinmaschigeres und ein grobmaschigeres Nickelnetz übereinander gelegt, miteinander punktverschweißt, so daß eine flexible Zwischenlage mit einer guten Kontaktierung geschaffen wird.

Als Nachteil hat sich beim Stand der Technik herausgestellt, daß sowohl beim Verlöten der Brennstoffzellenstapel als auch beim Betrieb der Brennstoffzelle bzw. des Brennstoffzellenstacks im direkten Kontaktbereich Nickelnetz/CrFe5 eine Oxidschicht aufwächst, die im nicht stoffschlüssigen Kontakt aus Cr_2O_3 (Cr_XO_Y) und im stoffschlüssigen Kontakt wahrscheinlich

aus einem CrNi-Spinell besteht. Diese Oxidschichten sind maßgeblich verantwortlich für die zu hohen Serienwiderstände der
Hochtemperaturbrennstoffzellen. Die elektrische Leistung wird
dadurch stark negativ beeinflußt.

3

Außerdem oxidiert das Nickelnetz beim Verlöten des Brennstoffzellenstacks mit einem Glaslot an Luftatmosphäre an der Oberfläche der Drähte einige µm in das Drahtinnere hinein. Durch die Bildung von Nickel-II-Oxid (NiO), das ein etwa 16 % größeres Volumen als Nickel aufweist, erfolgt eine Dickezunahme des gesamten Netzpaketes um etwa 10 - 40 µm (je nach Lötbedingungen). Die Dickenzunahme beträgt im oxidierten Bereich des Drahtes mehr als 16 %, da das entstandene NiO porös ist. Bei der Oxidierung versintern die Nickelnetze sowie deren Drähte miteinander. Bei der späteren Reduktion des Nikkelnetzes wird die ursprüngliche Dicke des Netzpaketes wieder erzeugt bzw. unter Umständen sogar noch reduziert.

5

10

30

35

Bei dieser Reduzierung versintern die Nickeldrähte miteinander, so daß eine Reduktion der angestrebten Flexibilität als
auch eine Reduzierung der Dicke eintritt, die unerwünscht
ist. Die Dickenreduzierung kann außerdem zu Kontaktabrissen
führen, welche Komponentenschädigungen erzeugen können.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine Brennstoffzelle bzw. einen Brennstoffzellenstack mit den Merkmalen des
Oberbegriffs des Patentanspruchs 1 derart weiterzubilden, daß
die Reduzierung der Dicke und der Flexibilität des/der Nikkelnetze(s) vermieden wird, so daß eine möglichst vollständige Kontaktierung der Anode und der Interkonnektorplatte
möglich ist.

Diese Aufgabe wird durch die kennzeichnenden Merkmale des Patentanspruchs 1 gelöst. Vorteilhafte Weiterbildungen der Brennstoffzelle ergeben sich aus den Unteransprüchen 2 - 8.

Als Kern der Erfindung wird es angesehen, daß zur flexiblen Kontaktierung zwischen Anode und Interkonnektorplatte mindestens ein metallisches Netz, das oxidationsgeschützt ist, eingefügt ist.

4

Derartige Netze als Kontaktschicht haben den Vorteil, daß diese nicht mehr oxidieren können, so daß auch die Dickenzunahme entfällt. Indem keine Oxidation stattgefunden hat, ist auch kein Reduktionsvorgang der metallischen Netze notwendig und die damit verbundenen Nachteile, wie z.B. Kontaktabrisse bei der Dickenreduzierung oder Flexibilitätseinbußen, entstehen nicht. Aufgrund des nicht stattfindenden Wechselprozesses Oxidation/Reduktion bleibt die ursprüngliche Dicke und Flexibilität der oxidationsgeschützten Netze erhalten, so daß eine gut kontaktierende Kontaktschicht zwischen Anode und Interkonnektor geschaffen wird. Außerdem wird eine Dickereduzierung der metallischen Netze mit fortlaufender Betriebsdauer verhindert.

10

30

Zweckmäßigerweise sind die metallischen Netze mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht beschichtet. Die metallischen Netze, z.B. Nickelnetze, bleiben auf diese Weise sowohl in ihrer Zusammensetzung als auch in ihren mechanischen und elektrischen Eigenschaften unbeeinflußt, d.h. u.a. sie bleiben weitgehend flexibel, führen keine Dickenänderung herbei und behalten im wesentlichen ihre vorteilhaften Eigenschaften bei. Vorteilhaft ist dabei, daß vor dem Einbringen als flexible Kontaktschicht die metallischen Netze dem Beschichtungsprozeß unterzogen werden. Die Zusammenfügung mit den anderen Bauteilen sowie das Verlöten ist anschließend in üblicher Weise durchzuführen.

Als metallische Netze können beschichtete Nickelnetze vorgesehen sein. Die Nickelnetze erfüllen dabei die Anforderungen hinsichtlich der Flexibilität als auch der elektrischen Leitfähigkeit.

Als metallische Netze können auch beschichtete Edelstahlnetze vorgesehen sein, welche die Eigenschaft haben, daß sie nur oberflächlich bis in eine Tiefe von ca. 5 µm oxidieren. Die Edelstahlnetze sind dabei ebenfalls mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht beschichtet. Ein weiterer Vorteil der

5

Edelstahlnetze besteht darin, daß deren thermischer Ausdehnungskoeffizient an das thermische Verhalten der Komponenten des Brennstoffzellenstacks gut angepaßt ist. Vor allem beim Hochtemperaturbetrieb der Brennstoffzelle ist diese Eigenschaft von erheblichem Vorteil.

Vorteilhafterweise enthält die Schutzschicht Chrom und ist damit an die chemische Zusammensetzung der Interkonnektorplatte angepaßt.

10

15

Die Schutzschicht besteht vorteilhafterweise aus Chromcarbid, welches in hohem Maße elektrisch leitend ist und sehr gut am metallischen Netz haftet. Eine Chromcarbidschicht ist außerdem sehr korrosionsbeständig gegen entsprechende Sauerstoffpartialdrücke auf der Brenngasseite. Ferner sind diese Schichten stabil unter Verwendung von Methan bzw. kohlestämmigen Gasen, welche spätere Einsatzmedien auf der Brenngasseite der Hochtemperatur-Brennstoffzelle sind.

Ein weiterer Vorteil der Beschichtung mit Chromcarbid besteht darin, daß bei Verwendung von kohlestämmigen Gasen, die durch die Gaskanäle der Anodenseite der Interkonnektoplatten hindurch geleitet werden, geringe Bestandteile aus den Schutzschichten durch die kohlestämmigen Gase wieder nachgebessert werden. Die Chromcarbidschicht ist daher thermodynamisch besonders günstig.

Als Chromcarbid können z.B. C_3C_2 , CrC, Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ verwendet werden.

30

Es ist auch möglich, daß die Schutzschicht der metallischen Netze aus Chromnitrid besteht.

Zweckmäßigerweise weist die Schutzschicht eine Dicke d von 35 0,1 - 10 µm auf, so daß einerseits ein ausreichender Oxidationsschutz vorhanden ist und andererseits die Flexibilität der metallischen Netze kaum eingeschränkt wird.

WO 01/04981

6

PCT/DE00/02071

Die Erfindung ist anhand eines vorteilhaften Ausführungsbeispiels in den Zeichnungsfiguren näher erläutert. Diese zeigen:

5 FIG 1 eine schematische Querschnittsdarstellung der Schichten einer Brennstoffzelle sowie

FIG 2 eine vergrößerte, schematische Querschnittsdarstellung eines beschichteten Nickelnetzes.

10

15

Der Brennstoffzellenstapel der Brennstoffzelle 1 entsprechend der schematischen Darstellung in FIG 1 besteht aus einer Interkonnektorplatte 5', einer Schutzschicht 8, einer Kontaktschicht 9, einer Kathode 2, einem Elektrolyten 3, einer Anode 4, zwei aufeinanderliegenden Nickelnetzen 6, 6' sowie einer Interkonnektorplatte 5, wobei diese Bauteile schichtweise aufeinander parallel angeordnet sind. Das Nickelnetz 6 ist dünner als das Nickelnetz 6'.

20 Die Nickelnetze 6, 6' sind oxidationsgeschützt, um eine Oxidation dieser Netze , welche üblicherweise beim Verlöten des gesamten Brennstoffzellenstacks auftritt, zu vermeiden. Die Oxidation der Nickelnetze ist mit einer Dickenzunahme verknüpft, wobei bei dem späteren Reduktionsvorgang die ur-25 sprüngliche Dicke des Netzpaketes wieder erzeugt wird. Dies kann zu Kontaktabrissen führen, welche Komponentenschädigungen erzeugen können. Außerdem versintern die Nickeldrähte nach der Reduzierung miteinander, so daß eine Reduktion der angestrebten Flexibilität resultiert. Die oxidationsgeschütz-30 ten Netze vermeiden demnach den Oxidations-/Reduktionsprozeß des Netzpaketes und die damit verbundenen Nachteile. Die ursprüngliche Flexibilität sowie die Dicke der Netze kann beibehalten werden, so daß eine vollflächige Kontaktierung von Anode 4 und der Kontaktschicht der Nickelnetze 6, 6' sowie 35 der Interkonnektorplatte 5 geschaffen wird. Außerdem wird

eine Dickenreduzierung der Nickelnetze 6, 6' beim Betrieb der Brennstoffzelle 1 verhindert.

7

Wie in FIG 1 und FIG 2 verdeutlicht, sind die Nickelnetze 6, 6' mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht 7 beschichtet. Diese Beschichtung kann vor dem Zusammenbau der einzelnen Komponenten vorgenommen werden. Die Nickelnetze 6, 6' werden somit in ihren ursprünglichen, vorteilhaften Eigenschaften nicht durch einen Oxidations- und einen anschließenden Reduktionsprozeß verändert. FIG 2 zeigt in einem vergrößerten Ausschnitt die Beschichtung von einem Nickelnetz 6 bzw. 6'.

10

Anstatt der Nickelnetze 6, 6' können auch Edelstahlnetze vorgesehen sein, welche den Vorteil haben, daß deren thermischer Längenausdehnungskoeffizient an die Komponenten der Hochtemperatur-Brennstoffzelle angepaßt ist.

15

20

25

Die Schutzschicht 7 besteht aus Chromcarbid, welches den Vorteil hat, daß bei Verwendung von kohlestämmigen Gasen, die durch die Gaskanäle der Anodenseite der Interkonnektorplatten 5, 5' eingeleitet werden, verschwindende Bestandteile aus den Schutzschichten durch die kohlestämmigen Gase wieder nachgebessert werden.

Als Chromcarbide können C_3C_2 , CrC, Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ oder ähnliche Chromcarbide mit unterschiedlichen Wertigkeiten verwendet werden.

Die Schutzschicht 7 weist eine Dicke d von 0,1 - 10 μm auf, μm eine Oxidation zuverlässig zu verhindern und die Flexibilität der Nickelnetze 6, 6' kaum zu beeinflussen.

8

Patentansprüche

20

1. Brennstoffzelle (1) bzw. Brennstoffzellenstack mit schichtweise parallel angeordneten Kathoden (2), Elektrolyten (3), Anoden (4) und Interkonnektorplatten (5, 5') sowie mindestens einem metallischen Netz (6, 6'), das zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5) zur flexiblen Kontaktierung eingefügt ist,

dadurch gekennzeichnet, daß das minde-10 stens eine metallische Netz (6, 6') oxidationsgeschützt ist.

- Brennstoffzelle nach Anspruch 1,
 d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß das mindestens eine metallische Netz (6, 6') mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht (7) beschichtet ist.
 - 3. Brennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Netz (6. 6') ein beschichtetes Nickelnetz ist.

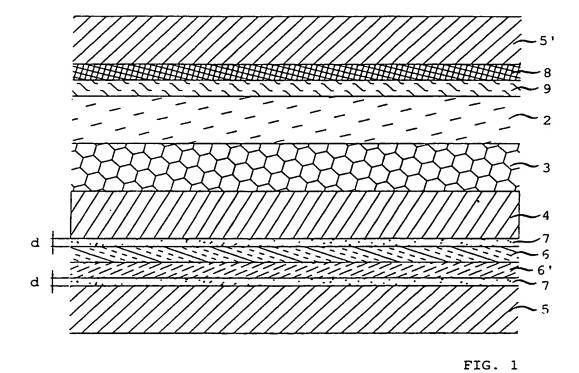
4. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche, da durch gekennzeichnet, daß das Netz (6, 6') ein beschichtetes Edelstahlnetz ist.

- 25 5. Brennstoffzelle nach den Ansprüchen 2 4, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß die Schutzschicht (7) Chrom enthält.
- 6. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche
 30 2 5,
 d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß die Schutzschicht (7) aus Chromcarbid besteht.
 - 7. Brennstoffzelle nach Anspruch 6,
- 35 dadurch gekennzeichnet, daß als Chromcarbid C_3C_2 , CrC, Cr7 C_3 oder $Cr_{23}C_6$ verwendet wird.

9

8. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dad urch gekennzeich net, daß die Schutzschicht (7) eine Dicke (d) von etwa 0,1 - 10 μ m aufweist.

		v	
		دا	
		•	
		is also	
		4	



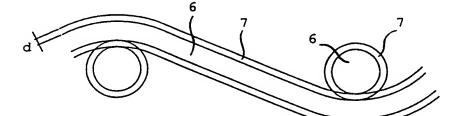


FIG. 2

			y
			`
			'n
		e e	

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 H01M8/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 HO1M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, PAJ

C. DUCUMENTS CONSIDER	KED IU BE HELEVANI

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Х	DE 42 37 602 A (SIEMENS AG) 11 May 1994 (1994-05-11) claims 1,3,6,7,11 column 3, line 45 - line 62 column 5, line 41 - line 51	1,2,4
Υ	column 7, line 6 - line 33	5-8
Y	DE 298 02 444 U (SIEMENS AG) 1 April 1999 (1999-04-01) claims 1-4; figure 1 page 3, paragraph 5 - paragraph 6 page 2, paragraph 3	5-8
X		1-3,5-8
A	DE 195 17 443 A (MOTOREN TURBINEN UNION) 14 November 1996 (1996-11-14) claims 1,2	4
	-/	

X Further documents are listed in the continuation of box C.	χ Patent family members are tisted in annex.
Special categories of cited documents: 'A' document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance 'E' earlier document but published on or after the international filing date 'L' document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) 'O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means 'P' document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	 "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "&" document member of the same patent family
Oate of the actual completion of the international search 31 October 2000	Date of mailing of the international search report 07/11/2000
Name and mailing address of the ISA	Authorized officer

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

4

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl. Fax: (+31-70) 340-3016

D'hondt, J

Inte ional Application No PCT/DE 00/02071

	tion) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 338 823 A (TOA NENRYO KOGYO KK) 25 October 1989 (1989-10-25) page 6, line 41 - line 46	4
A	DE 40 16 157 A (ASEA BROWN BOVERI) 13 December 1990 (1990-12-13) column 10, line 28 -column 11, line 18; example 1	1
P,A	DE 198 36 352 A (SIEMENS AG) 17 February 2000 (2000-02-17) column 3, line 43 - line 48; claims 1,2; figure 1	1,3
A	WO 99 13522 A (JAFFREY DONALD ;CERAMIC FUEL CELLS LTD (AU)) 18 March 1999 (1999-03-18) page 11, line 25 - line 28	3
A	US 5 064 734 A (NAZMY MOHAMED) 12 November 1991 (1991-11-12) claim 1	1
*		

Information on patent family members

Inte Idea: Application No PCT/DE 00/02071

Patent document cited in search report		Publication date		ent family ember(s)	Publication date
DE 4237602	A	11-05-1994	WO EP JP NO	9411913 A 0667042 A 8502851 T 951780 A	26-05-1994 16-08-1995 26-03-1996 05-05-1995
DE 29802444	U	01-04-1999	WO WO	3246899 A 9941795 A	30-08-1999 19-08-1999
DE 19517443	Α	14-11-1996	NONE		
EP 0338823	A	25-10-1989		2177265 A 2037669 A 88917192 D 88917192 T 4950562 A 2050983 A 2604437 B	10-07-1990 07-02-1990 08-09-1994 17-11-1994 21-08-1990 20-02-1990 30-04-1997
DE 4016157	Α	13-12-1990	NONE		
DE 19836352	A	17-02-2000	AU WO	6461499 A 0010214 A	06-03-2000 24-02-2000
WO 9913522	A	18-03-1999	AU EP	8964898 A 1019974 A	29-03-1999 19-07-2000
US 5064734	A	12-11-1991		0424732 A 3155046 A	02-05-1991 03-07-1991

		ν
		1)
) .

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 H01M8/02

Nach der Internationalen Patentidassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 7 HO1M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ

C. ALS W	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DE 42 37 602 A (SIEMENS AG)	1,2,4
	11. Mai 1994 (1994-05-11)	
	Ansprüche 1,3,6,7,11	
	Spalte 3, Zeile 45 - Zeile 62	
	Spalte 5, Zeile 41 - Zeile 51	
v	Spalte 7, Zeile 6 - Zeile 33	
Y		5-8
٧	DE 298 02 444 U (SIEMENS AG)	5-8
'	1. April 1999 (1999-04-01)] 30
	Ansprüche 1-4; Abbildung 1	1
	Seite 3, Absatz 5 - Absatz 6	
	Seite 2, Absatz 3	
X		1-3,5-8
Α	DE 195 17 443 A (MOTOREN TURBINEN UNION)	4
	14. November 1996 (1996-11-14) Ansprüche 1,2	
		1
	-/	1

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu X

Siehe Anhang Patentfamilie

- Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen
- *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweitelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Berutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondem nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, werm die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- *&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 31. Oktober 2000 07/11/2000 Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016 D'hondt, J

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (Juli 1992)



RECHERCHENBERICHT

PCT/DE 00/02071

Kategorie®	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Retr Anong wh No
	occomming on veronentally, sometimental taller Argabe del III Detractikonimenden 16te	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 338 823 A (TOA NENRYO KOGYO KK) 25. Oktober 1989 (1989-10-25) Seite 6, Zeile 41 - Zeile 46	4
A	DE 40 16 157 A (ASEA BROWN BOVERI) 13. Dezember 1990 (1990-12-13) Spalte 10, Zeile 28 -Spalte 11, Zeile 18; Beispiel 1	1
P,A	DE 198 36 352 A (SIEMENS AG) 17. Februar 2000 (2000-02-17) Spalte 3, Zeile 43 - Zeile 48; Ansprüche 1,2; Abbildung 1	1,3
A	WO 99 13522 A (JAFFREY DONALD ;CERAMIC FUEL CELLS LTD (AU)) 18. März 1999 (1999-03-18) Seite 11, Zeile 25 - Zeile 28	3
A	US 5 064 734 A (NAZMY MOHAMED) 12. November 1991 (1991-11-12) Anspruch 1	1
Ì		
ļ		

Inte on ktenzeichen PCT/DE 00/02071

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokume	ent	Datum der Veröffentlichung		itglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 4237602	A	11-05-1994	WO EP JP NO	9411913 A 0667042 A 8502851 T 951780 A	26-05-1994 16-08-1995 26-03-1996 05-05-1995
DE 29802444	U	01-04-1999	AU WO	3246899 A 9941795 A	30-08-1999 19-08-1999
DE 19517443	Α	14-11-1996	KEIN	E	
EP 0338823	A	25-10-1989	JP JP DE DE US JP JP	2177265 A 2037669 A 68917192 D 68917192 T 4950562 A 2050983 A 2604437 B	10-07-1990 07-02-1990 08-09-1994 17-11-1994 21-08-1990 20-02-1990 30-04-1997
DE 4016157	A	13-12-1990	KEIN	E	
DE 19836352	A	17-02-2000	AU WO	6461499 A 0010214 A	06-03-2000 24-02-2000
WO 9913522	A	18-03-1999	AU EP	8964898 A 1019974 A	29-03-1999 19-07-2000
US 5064734	A	12-11-1991	EP JP	0424732 A 3155046 A	02-05-1991 03-07-1991